(19) [Publication Office] Japanese Patent Office (JP) (19) 【発行国】日本国特許庁(JP) (12) 【公報種別】公開特許公報 (A) (12) [Kind of Document] Japan Unexamined Patent Publication (11) 【公開番号】特開平8-231529 (11) [Publication Number of Unexamined Application] Japan U nexamined Patent Publication Hei 8 - 2 31 529 (43) 【公開日】平成8年(1996) 9月10日 (43) [Publication Date of Unexamined Application] 1996 (199 6) September 10 day (54) 【発明の名称】ヒドラジン誘導体およびそれを有効成分 (54) [Title of Invention] IT DESIGNATES HYDRAZINE DERI とする殺虫組成物 VATIVE AND THAT AS ACTIVE INGREDIENT INSECTICIDAL COMPOSITION (51) [International Patent Classification 6th Edition] C07D3 (51) 【国際特許分類第6版】 C07D307/79 AO1N 43/12 07/79 A01N 43/12 A01N 43/1 A01N 43/12 Z [FI] CO7D307/79 [FI] C07D307/79 [Request for Examination] Examination not requested 【審査請求】未請求 [Number of Claims] 8 【請求項の数】8 [Form of Application] OL 【出願形態】OL 【全頁数】11 [Number of Pages in Document] 11 (21) [Application Number] Japan Patent Application Hei 7 - 38 (21) 【出願番号】特願平7-38559 559 (22) [Application Date] 1995 (1995) February 27 day (22) 【出願日】平成7年(1995) 2月27日 (71) 【出願人】 (71) [Applicant] [Applicant Code] 000004086 【識別番号】000004086 【氏名又は名称】日本化薬株式会社 Name | NIPPON KAYAKU CO. LTD. (DB 69-054-7468) 《住所又は居所》東京都千代田区富士見1丁目11番2号 [Address] Tokyo Chiyoda-ku Fujimi 1-11-2 (71) 【出願人】 (71) [Applicant] [Applicant Code] 000001856 【識別番号】000001856 【氏名又は名称】三共株式会社 [Name] SANKYO CO., LTD. 《住所又は居所》東京都中央区日本橋本町3丁目5番1号 [Address] Tokyo Chuo-ku Nihonbashi Honmachi 3-Chome 5-1 (72) 【発明者】 (72) [Inventor] 【氏名】戸谷 哲也 [Name] Toya Tetsuya [Address] Saitama Prefecture Yono City Kamiochiai 1090 day

ISTA's Paterra(tm), Version 1.5 (There may be errors in the above translation. ISTA cannot be held liable for any detriment from its use. WWW: http://www.intlscience.com Tel:800-430-5727)

【住所又は居所】埼玉県与野市上落合1090 日化社宅B

421

(72) 【発明者】

【氏名】加藤 康仁

【住所又は居所】埼玉県与野市上落合1090 日化社宅B 431

(72) 【発明者】

【氏名】山本 由美子

【住所又は居所】埼玉県上尾市仲町2-13-4 ファーストハイム303

(72) 【発明者】

【氏名】渡部 哲夫

【住所又は居所】埼玉県上尾市小敷谷880一33

(72) 【発明者】

【氏名】柳 幹夫

【住所又は居所】埼玉県桶川市川田谷4265-3

(72) 【発明者】

【氏名】塚本 芳久

【住所又は居所】滋賀県野洲郡野洲町野洲1041 三共株 式会社内

(74) 【代理人】

【弁理士】

(57) 【要約】 (修正有)

【構成】 下記式(1)で示されるベンゾフラン環を有する ヒドラジン誘導体、それらの製造方法および該誘導体を有効 成分として含有する殺虫組成物。

A-011 R² R³ (1

[式中Aは水素原子または(C_1-C_4)アルキル基を示し、 R^1 、 R^2 、 R^3 R^4 および R^5 はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C_1-C_4)アルキル基または(C_2

conversion company housing B421

(72) [Inventor]

[Name] Kato Yasuhito

[Address] Saitama Prefecture Yono City Kamiochiai 1090 day conversion company housing B4 31

(72) [Inventor]

[Name] Yamamoto Yumiko

[Address] Saitama Prefecture Ageo City Nakamachi 2 - 13 - 4 f ast Heim 303

(72) [Inventor]

[Name] Watabe Tetsuo

[Address] Saitama Prefecture Ageo City Koshikiya 880 - 33

(72) [Inventor]

[Name] Willow Mikio

[Address] Saitama Prefecture Okegawa City Kawada valley 4265 - 3

(72) [Inventor]

[Name] Tsukamoto Yoshihisa

[Address] Inside of Shiga Prefecture Yasu-gun Yasu-cho Yasu 10 41 Sankyo Co., Ltd.

(74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

[Patent Attorney]

(57) [Abstract] (There is an amendment.)

[Constitution] Hydrazine derivative, those manufacturing met hod and contains said derivative as effective component insecticidal composition which possess benzofuran ring which is shown with below-mentioned Formula (1).

[A in Formula shows hydrogen atom or (C1 - C4) alkyl group, R1, the R2 and R3 R4 and R5 hydrogen atom, halogen atom, show (C1 - C4) alkyl group or (C2 - C5) alkenyl group etc in

 $-C_5$) アルケニル基などを示し、R は水素原子、シアノ基、(C_1-C_4) アシル基またはハロゲン原子などを示し、 R^7 は非置換の(C_3-C_{10}) 分枝アルキル基または同じかもしくは異なった 1 もしくは 2 個の(C_3-C_6) シクロアルキルで置換された(C_1-C_4) 直鎖状アルキル基を示す。]

【効果】 この誘導体は、近年殺虫剤に抵抗性をつけて問題となっている害虫、特に鱗翅目害虫(コナガ、ハスモンヨトウ、コブノメイガ、チャノコカクモンハマキなど)に対し高い殺虫効果を有する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式

【化1】

[式中Aは水素原子または(C_1-C_4)アルキル基を示し 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ独立に水素 原子、ハロゲン原子、($C_1 - C_4$)アルキル基、($C_2 C_5$) アルケニル基、(C_2-C_5)アルキニル基、(C_1-C_4)アルコキシ基、(C_1-C_4)ハロアルキル基、 $(C_1 - C_4)$ ハロアルコキシ基、シアノ基またはニトロ基 を示す。R6は水素原子、シアノ基、(C1-C4)アシル 基、ハロゲン原子もしくはOR®(ただしR®は水素原子、 $(C_1 - C_4)$ アルキル基または $(C_1 - C_4)$ アシル基を 示す)で置換されてもよい($C_1 - C_4$)アルキル基、(C $_2-C_5$) アルキニル基、(C_2-C_5)アルケニル基また はSR⁹ (ただしR⁹ は (C₁ - C₄) アルキル基または ($C_1 - C_4$) ハロアルキル基を示す)を示す。 R^7 は非置換 の(C₃ - C₁₀)分枝アルキル基または同じかもしくは異な った1もしくは2個の(C_3-C_6)シクロアルキル基で置 換された $(C_1 - C_4)$ 直鎖状アルキル基を示す。] で表わ されるヒドラジン誘導体。

【請求項2】 Aが水素原子またはメチル基を示し、 R^1 が水素原子または($C_1'-C_4$)アルキル基を示し、 R^2 が水素原子またはハロゲン原子を示し、 R^3 、 R^4 および R^5 がそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C_1-C_4)ア

respective independence, R6 hydrogen atom , the cyano group , shows (C1 - C4) acyl group or halogen atom etc, R7 unsubstituted (C3 - C10) branched alkyl group or thesame or 1 or 2 which differs shows (C1 - C4) straight chain alkyl group where issubstituted with (C3 - C6) cycloalkyl.]

[Effect(s)] This derivative, recently attaching resistance to ins ecticide, has highinsecticidal effect vis-a-vis insect pest and especially lepidopteran pest (Such as Plutella xylostella (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth), Spodoptera litura (Fabricus) (tobacco cutworm), Cnaphalocrocis medinalis (Guenee) (rice leafroller) and Adoxophyes sp.) which become the problem.

[Claim(s)]

[Claim 1] General Formula

[Chemical Formula 1]

Hydrazine derivative which is displayed with [A in Formula sho ws hydrogen atom or (C1 - C4) alkyl group, R1, the R2, R3 and R4 and R5 hydrogen atom, halogen atom and (C1 - C4) alkyl group, the (C2 - C5) alkenyl group, (C2 - C5) alkynyl group, (C1 - C4) alkoxy group, (C1 - C4) haloalkyl group, (C1 - C4) haloalkoxy group, show cyano group or nitro group in respective independence. R6 hydrogen atom, cyano group and (C1 - C4) acyl group, optionally substitutable (C1 -C4) alkyl group and (C2 - C5) alkynyl group, shows (C2 - C5) alkenyl group or S R9 (However R9 shows (C1 - C4) alkyl group or (C1 - C4) haloalkyl group.) with halogen atom or OR8 (However R8 shows hydrogen atom, (C1 - C4) alkyl group or (C1 - C4) acyl group.). R7 unsubstituted (C3 -C10) branched alkyl group or same or 1 or 2 which differs shows the(C1 - C4) straight chain alkyl group where is substituted with (C3 - C6) cycloalkyl group.].

[Claim 2] A shows hydrogen atom or methyl group , R1 shows hydrogen atom or (C1 - C4) alkyl group, the R2 shows hydrogen atom or halogen atom, R3 and R4 and R5 hydrogen atom , halogen atom and (C1 - C4) alkyl group , (C1 - C4)

ルキル基、($C_1 - C_4$)アルコキシ基、($C_1 - C_4$)ハロアルキル基、($C_1 - C_4$)ハロアルコキシ基、シアノ基またはニトロ基を示し、 R^6 が水素原子またはシアノ基を示し、 R^7 が非置換の($C_4 - C_6$)分枝アルキル基を示す請求項1記載のヒドラジン誘導体。

【請求項3】 Aが水素原子を示し、 R^1 が水素原子またはメチル基を示し、 R^2 が水素原子を示し、 R^3 、 R^4 および R^5 がそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C_1-C_2) アルキル基、(C_1-C_2) アルコキシ基、(C_1-C_2) ハロアルキル基、シアノ基または二トロ基を示し、 R^6 が水素原子を示し、 R^7 が非置換の(C_4-C_6) 分枝アルキル基を示す請求項2 記載のヒドラジン誘導体。

【請求項4】 N-ベンゾフラン-6-カルボーN'-tertーブチルーN'-3、5ージメチルベンゾイルヒドラジンおよび<math>N-7-メチルベンゾフラン-6-カルボーN'-tertーブチルーN'-3、5ージメチルベンゾイルヒドラジンから選ばれる請求項3記載のヒドラジン誘導体。

【請求項5】 請求項1~4記載のヒドラジン誘導体を有効成分として含有することを特徴とする殺虫組成物。

【請求項6】 請求項1~4記載のヒドラジン誘導体を害虫に施用することを特徴とする殺虫方法。

【請求項7】 一般式

【化2】

(式中AおよびR¹ ~R⁷ は請求項1で定義した通りである)で示されるヒドラジン誘導体の製造法であって、不活性溶媒中塩基の存在下で式

[化3]

alkoxy group, (C1 - C4) haloalkyl group, (C1 - C4) haloalkoxy group, show the cyano group or nitro group in respective independence, R6 shows hydrogen atom or cyano group, thehydrazine derivative which is stated in Claim 1 where R7 shows unsubstituted (C4 - C6) branched alkyl group.

[Claim 3] A shows hydrogen atom, R1 shows hydrogen atom or methyl group, R2 showsthe hydrogen atom, R3 and R4 and R5 hydrogen atom, halogen atom and (C1 - C2) alkyl group, (C1 - C2) alkoxy group, (C1 - C2) haloalkyl group, (C1 - C2) haloalkoxy group, show cyano group or nitro group in therespective independence, R6 shows hydrogen atom, hydrazine derivative which is stated in Claim 2 where R7 shows unsubstituted (C4 - C6) branched alkyl group.

[Claim 4] Hydrazine derivative which is stated in Claim 3 which is chosen from N - benzofuran - 6 - carbo- N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine and N - 7 - methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine.

[Claim 5] Insecticidal composition which designates that it contains hydrazine derivative which is stated in Claim 1 to 4 as active ingredient as feature.

[Claim 6] Hydrazine derivative which is stated in Claim 1 to 4 in insect pest application theinsecticidal method which designates that it does as feature.

[Claim 7] General Formula

[Chemical Formula 2]

Being a production method of hydrazine derivative which is sho wn with (A and R1 to R7 in Formula are as defined with Claim 1.), under existing of base in inert solvent system

[Chemical Formula 3]

(式中A、 R^1 、 R^2 、 R^6 、 R^7 は上記で定義した通りである)のヒドラジド化合物を、式

Hydrazide compound of (A in Formula, R1, R2, R6 and R7 are as defined at description above.), system

【化4】

[Chemical Formula 4]

$$X = \begin{cases} \frac{R^3}{n} & (3) \\ R^5 & \end{cases}$$

(式中、Xはハロゲン原子であり、R³ ~ R⁵ は上記で定義 した通りである)のハロゲン化ベンゾイル化合物と反応させ ることからなる方法。

Method which consists of fact that it reacts with halogenated b enzoyl compound of the (In Formula, X is halogen atom, R3 to R5 is as defined at description above.).

【請求項8】 請求項1記載の一般式(1)でR⁶が水素で あるヒドラジン誘導体の製造法であって、式 [Claim 8] Being a production method of hydrazine derivative where R6 is hydrogen with General Formula (1) which is stated in Claim 1, system

【化5】

[Chemical Formula 5]

$$A \longrightarrow \bigcap_{R^1 \longrightarrow R^2} X \qquad (4)$$

(式中A、R¹ およびR² は上記で定義した通りであり、X はハロゲン原子である)のハロゲン化ベンゾイル化合物を、 不活性溶媒中、塩基の存在下で式 Halogenated benzoyl compound of (A in Formula, R1 and R2 is as defined at description above, the X is halogen atom.), in inert solvent and under existing of base system

【化6】

[Chemical Formula 6]

$$H_2N$$
 H_2N
 H_3
 H_5
 H_5
 H_5
 H_5

(式中、 $R^3 \sim R^5$ 、 R^7 は上記で定義した通りである)の ヒドラジド化合物と反応させることからなる方法。 Method which consists of fact that it reacts with hydrazide compound ofthe (In Formula, R3 to R5 and R7 are as defined at descriptionabove.).

【発明の詳細な説明】

[Description of the Invention]

[0001]

[0001]

【産業上の利用分野】本発明は新規なヒドラジン誘導体に関するものであり、該誘導体は水田、畑地、果樹園、森林または環境衛生場面における殺虫剤として利用することができる。また、該誘導体は人または動物を寄生虫の障害から保護するために寄生虫防除剤として利用することができる。

[Field of Industrial Application] This invention is something reg arding novel hydrazine derivative, as for said derivative it canutilize as insecticide in paddy field, farmland, orchard, forest orthe environment hygiene locale. In addition, it can utilize said derivative in order to protect personor animal from

[0002]

【従来の技術】特開昭62-167747号、特開平4-235117号にはN'一置換-N, N'ージアシルヒドラジン誘導体が殺虫活性を有することが記載され、また特開昭62-263150号にはN, N'ージ置換-N, N'ージアシルヒドラジン誘導体が殺虫活性を有することが記載されている。しかし、これら特許には後記する本発明の誘導体についての具体的な記載はされていない。

[0003]

【発明が解決しようとする課題】水田、畑地、果樹園、森林、または環境衛生場面における有害生物防除場面で、より大きい殺虫活性および有益昆虫、環境等には害を及ぼさない性質を有し、かつ低毒性な化合物が要求されている。また、最近では公知の殺虫剤例えば有機リン剤、カーバメート剤、ピレスロイド剤等に対し抵抗性を示す害虫が増大し、防除が困難となってきており、新しいタイプの薬剤が要求されている

【 〇 〇 〇 4 】本発明は、有益昆虫、環境等には実質的に害を 及ぼさず、低毒性で薬剤抵抗性害虫にも卓効を示す新しいタ イプの殺虫性化合物およびそれを有効成分とする殺虫組成物 を提供することを目的としている。

[0005]

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために鋭 意研究した結果、一般式、

[0006]

【化7】

$$A = \begin{pmatrix} 0 & R^7 & R^3 & \\ N & N & R^5 & \\ R^4 & 0 & R^5 & \\ R^5 &$$

【OOO7】 [式中Aは水素原子または(C_1-C_4)アルキル基を示し、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞ れ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C_1-C_4)アルキル基、(C_2-C_5)アルケニル基、(C_2-C_5)アルキニル基、(C_1-C_4)アルコキシ基、(C_1-C_4)ハロア

disorder of parasite as parasite eradicant.

[0002]

[Prior Art] N' - substituted-N, N'-di acyl hydrazine derivative ha ving insecticidal activity is stated in Japan Unexamined Patent Publication Showa 62 - 167747 number and Japan Unexamined Patent Publication Hei 4 - 235117number, in addition N, N'-di substituted-N, N'-di acyl hydrazine derivative having insecticidal activity is stated in Japan Unexamined Patent Publication Showa 62 - 26 31 50number. But, exemplary statement concerning derivative of this invention whichpostscript is done to these Patent is not done.

[0003]

[Problems to be Solved by the Invention] With pest control loc ale in rice paddy, farmland, orchard, forest or theenvironment hygiene locale, it possesses property which does not cause damage in a largerinsecticidal activity and beneficial insect and environment etc, at same time low toxicity compound isrequired. In addition, recently insect pest which shows resistance insecticide for example organic phosphorus agent of thepublic knowledge, vis-a-vis carbamate agent and pyrethroid agent etc increases, prevention has become difficult, chemical of new type isrequired.

[0004] It designates that insecticidal compound of new type wh ere this invention, doesnot cause damage to beneficial insect and environment etc substantially, withthe low toxicity shows high efficiency even in drug resistant harmful insect and insecticidal composition whichdesignates that as active ingredient are offered as object.

[0005]

[Means to Solve the Problems] In order to achieve above-menti oned objective result of diligent research, the General Formula,

[0006]

[Chemical Formula 7]

[0007] Discovering fact that it possesses insecticidal activity where novel hydrazine derivative whichis displayed with [A in Formula shows hydrogen atom or (C1 - C4) alkyl group, R1, the R2, R3 and R4 and R5 hydrogen atom, halogen atom and (C1 - C4) alkyl group, the (C2 - C5) alkenyl group, (C2 -

ルキル基、(C_1-C_4)ハロアルコキシ基、シアノ基または二トロ基を示す。 R^6 は水素原子、シアノ基、($C_1\sim C_4$)アシル基、ハロゲン原子もしくは OR^8 (ただし R^8 は水素原子、(C_1-C_4)アルキル基または(C_1-C_4)アシル基を示す)で置換されてもよい(C_1-C_4)アルキール基、(C_2-C_5)アルキニル基、(C_2-C_5)アルキニル基またはS R^9 (ただし R^9 は(C_1-C_4)アルキル基または(C_1-C_4)ハロアルキル基を示す)を示す。 R^7 は非置換の(C_3-C_{10})分枝アルキル基または同じかもしくは異なった1もしくは2個の(C_3-C_6)シクロアルキル基で置換された(C_1-C_4)直鎖状アルキル基を示す。]で表わされる新規ヒドラジン誘導体が優れた殺虫活性を有することを見い出し本発明を完成するに至った。

C5) alkynyl group , (C1 - C4) alkoxy group , (C1 - C4) haloalkyl group , (C1 - C4) haloalkoxy group ,show cyano group or nitro group in respective independence. R6 hydrogen atom , cyano group and (C1 to C4) acyl group , optionally substitutable (C1 - C4) alkyl group and (C2 - C5) alkynyl group , shows (C2 - C5) alkenyl group or S R9 (However R9 shows (C1 - C4) alkyl group or (C1 - C4) haloalkyl group .) with halogen atom or O R8 (However R8 shows hydrogen atom , (C1 - C4) alkyl group or (C1 - C4) acyl group .) R7 unsubstituted (C3 - C10) branched alkyl group or same or 1 or 2 which differs shows the(C1 - C4) straight chain alkyl group where is substituted with (C3 - C6) cycloalkyl group.] is superior this invention it reached tocompletion.

【0008】一般式(1)において、ハロゲン原子としては 、例えばフッ素、塩素、臭素または沃素原子が挙げられ、(C₁ - C₂) アルキル基としては、例えばメチル、エチル、 nープロピル、イソブチル、secーブチル、tertーブ チルなどが挙げられ、(C_2-C_5) アルケニル基としては、例えばアリル、1-プロペニル、エテニル、<math>2-ブテニル基などが挙げられ、(C_2-C_5)アルキニル基としては、 例えばエチニル、プロピニル、ブチニル基などが挙げられ、 $(C_1 - C_4)$ アルコキシ基としては、例えばメトキシ、エ トキシ、nープロポキシ、イソプロポキシ、nーブトキシ、 イソブトキシ、sec-ブトキシ、tert-ブトキシ基な どが挙げられ、(C₁ - C₄)ハロアルキル基としては、例 えば1-もしくは2-クロロエチル、クロロメチル、ジクロ ロメチル、ブロモメチル、1-もしくは2-ブロモエチル、 フルオロメチル、ジフルオロメチル、トリフルオロメチル基 などが挙げられ、($C_1 - C_4$) ハロアルコキシ基としては 、例えば1-もしくは2-ブロモエトキシ、3-ブロモーn ープロポキシ、2, 2, 2-もしくは1, 1, 1ートリフル オロエトキシ、トリフルオロメトキシ基などが挙げられ、($C_1 - C_4$) アシル基としては、例えばアセチル、プロピオ ニル基などが挙げられ、($C_3 - C_{10}$)分枝アルキル基とし ては、例えばtertーブチル、1, 2, 2ートリメチルプ ロピル、2, 2ージメチルプロピル、1, 2, 2ートリメチ ルブチル基などが挙げられ、(C_3-C_6)シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル、シクロブチル、シクロ ペンチル、シクロヘキシル基などが挙げられ、(C_1 $\sim C_4$) 直鎖状アルキル基としては、例えばメチル、エチル、プロ ピル、ブチル基などが挙げられる。

【0009】本発明のヒドラジン誘導体において好ましいものは、一般式(1)においてAは水素またはメチル基を示し、 R^1 は水素または(C_1-C_4)アルキル基を示し、 R^2 は水素原子またはハロゲン原子を示し、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C_1-C_4)アルキル基、(C_1-C_4)アルコキシ基、(C_1-C_4)ハロアルキル基、シ

[0008] In General Formula (1) putting, As halogen atom, for e xample fluorine, chlorine, bromine or iodine atom to be listed, As (C1 - C4) alkyl group, for example methyl, ethyl, n propyl, isobutyl, s-butyl, t-butyl etc to be listed, As (C2-C5) alkenyl group, for example allyl, 1 - propenyl, ethenyl, 2 - butenyl group etc to be listed, As (C2 - C5) alkynyl group, for example ethinyl, propinyl, butinyl group etc to be listed, As (C1 - C4) alkoxy group, for example methoxy, ethoxy, n - propoxy, isopropoxy, n - butoxy, isobutoxy, s - butoxy, tert - butoxy group etc to be listed, As (C1 - C4) haloalkyl group, for example 1- or 2- chloroethyl, chloromethyl, dichloro methyl, bromomethyl, 1- or 2- bromoethyl, fluoromethyl, difluoromethyl, trifluoromethyl group etc to be listed, As (C1 - C4) haloalkoxy group, for example 1- or 2bromo ethoxy, 3 - bromo - n - propoxy, 2,2,2 - or 1,1,1 trifluoro ethoxy, You can list trifluoromethoxy group, etc you can list for example acetyl and propanoyl group etcas (C1 - C4) acyl group, you can list for example t-butyl, 1,2,2 trimethylpropyl, 2,2-di methylpropyl and the 1,2,2 - trimethyl butyl group etc as (C3 - C10) branched alkyl group, you can list for example cyclopropyl, cyclobutyl, the cyclopentyl and cyclohexyl group etc as (C3 - C6) cycloalkyl group, you can list for example methyl, the ethyl, propyl and butyl group etc as (C1 to C4) straight chain alkyl group.

[0009] In hydrazine derivative of this invention as for desirable ones, A shows hydrogen or methyl group in General Formula (1), R1 shows hydrogen or(C1 - C4) alkyl group, R2 shows hydrogen atom or halogen atom, R3 and R4 and R5 thehydrogen atom, halogen atom and (C1 - C4) alkyl group, (C1 - C4) alkoxy group, (C1 - C4) haloalkyl group, (C1 - C4) haloalkoxy group, show cyano group or nitro group in

アノ基またはニトロ基を示し、 R^6 は水素原子またはシアノ基を示し、 R^7 は非置換の($C_4 - C_6$)分枝アルキル基を示すヒドラジン誘導体である。

respective independence, R6 shows the hydrogen atom or cyano group, R7 is hydrazine derivative which shows unsubstituted (C4 - C6) branched alkyl group.

【0010】本発明のヒドラジン誘導体においてより好ましいものは、一般式(1)においてAは水素を示し、 R^1 は水素原子またはメチル基を示し、 R^2 は水素原子を示し、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、($C_1^1-C_2$)アルキル基、($C_1^1-C_2$)アルコキシ基、($C_1^1-C_2$)ハロアルキル基、(C_1-C_2)ハロアールコキシ基、シアノ基または二トロ基を示し、 R^6 は水素原子を示し、 R^7 は非置換の(C_4-C_6)分枝アルキル基を示すヒドラジン誘導体である。

[0010] In hydrazine derivative of this invention as for more des irable ones, A shows hydrogen in General Formula (1), R1 shows hydrogen atom or methyl group , the R2 shows hydrogen atom, R3 and R4 and R5 hydrogen atom , halogen atom and (C1 - C2) alkyl group , (C1 - C2) alkoxy group , (C1 - C2) haloalkyl group , (C1 - C2) haloalkoxy group , show the cyano group or nitro group in respective independence, R6 shows hydrogen atom, the R7 is hydrazine derivative which shows unsubstituted (C4 - C6) branched alkyl group.

【 O O 1 1 】 本発明のヒドラジン誘導体においてより好ましい特定のものは、Nーベンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルーN'ー3, 5ージメチルベンゾイルヒドラジンおよびN-7ーメチルベンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルーN'ー3, 5ージメチルベンゾイルヒドラジンから選ばれるヒドラジン誘導体である。

[0011] More desirable specific ones are hydrazine derivative which is chosen from the N-benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine and N - 7 - methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine in hydrazine derivative of this invention.

【0012】本発明の一般式(1)の化合物は以下の方法で 製造することができる。すなわち、一般式 [0012] It can produce compound of General Formula (1) of this invention with methodbelow. namely, General Formula

[0013]

[0013]

【化8】

[Chemical Formula 8]

【OO14】(式中A、 R^1 、 R^2 、 R^6 、 R^7 は前記と同じ意味を有する)で示されるヒドラジド化合物と、一般式

[0014] Are shown with (A in Formula, R1, R2, R6 and R7h ave same meaning as description above.) hydrazide compound and General Formula which

[0015]

[0015]

【化9】

[Chemical Formula 9]

$$X = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} R^3 \\ \frac{1}{2} R^4 \end{bmatrix}$$
 (3)

【0016】(式中、Xはハロゲン原子であり、R³ ~ R⁵ は前記と同じ意味を有する)で表わされるベンゾイルハライドとを、溶媒および塩基の存在下で反応させることにより、一般式(1)の化合物を得ることができる。

[0016] Compound of General Formula (1) can be acquired benz oyl halide which is displayed with (In Formula, X is halogen atom, R3 to R5 has same meaning as description above.), with solvent and reacting under existing of base.

【0017】反応には一般式(2)の化合物と一般式(3) の化合物とを任意の割合で使用することが出来るが、好まし くは等モル比かほぼ等モル比で使用する。溶媒としては反応 に対して不活性な溶媒を用いることができる。たとえば、ヘ キサン、ヘプタンなどの脂肪族炭化水素系化合物、ベンゼン 、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系化合物、ジク ロロメタン、クロロホルム、クロロベンゼンなどのハロゲン 化炭化水素系化合物、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラ ンなどのエーテル系化合物、アセトニトリル、プロピオニト リルなどのニトリル系化合物などが挙げられる。また、これ らの混合溶媒およびこれらと水との混合溶媒も用いることが 出来る。塩基としては例えば、水酸化カリウム、水酸化ナト リウム、炭酸カリウムなどの無機塩基、トリエチルアミン、 ピリジンなどの有機塩基を使用することができる。トリエチ ルアミン、ピリジンなどの有機塩基を用いた場合は大過剰に 用いて溶媒として使用することもできる。塩基の量は化学量 論量もしくは過剰に用いることができるが、好ましくは化学 置論置かそれより1.0~5.0倍過剰な量を用いる。反応 は、-20℃から溶媒の沸点までの温度範囲で行うことがで きるが好ましくは-5°~50°Cの範囲である。4-ジメチ ルアミノピリジンなどの触媒を反応系中に添加することもで きる。

【0018】一般式(1)の化合物においてR⁶が前記定義のうち水素原子以外のものである化合物は、R⁶が水素原子である場合の一般式(1)の化合物を、アルカリ金属水素化物(水素化ナトリウム等)のような塩基の存在下、不活性溶媒たとえばテトラヒドロフラン、ジオキサン、エーテル、N、Nージメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等中で、式X-R⁶(Xはハロゲン原子を示し、R⁶は前記のものを示す)で表わされる相応するハロゲン化物、例えばシアノゲンブロマイド、ハロゲノメチルチオハライド、アリルブロマイド等と、好ましくは-10~50℃で反応させることにより得ることもできる。

【0019】一般式(1)の化合物を製造するために用いられる一般式(2)の化合物は、一般式(6)で表わされるヒドラジンと、対応する一般式(4)で表わされるベンゾイルハライドとを反応させることにより得ることができる。該反応を下記に図示する。

[0020]

[0017] Is possible fact that you use with compound of General F ormula (2) and the compound of general formula (3) at ratio of option to reaction, but preferably equimolar ratioalmost you use with equimolar ratio. As solvent inert solvent can be used vis-a-vis reaction. You can list for example hexane, heptane or other aliphatic hydrocarbon compound, benzene, toluene, xylene or other aromatic hydrocarbon-based compound, the dichloromethane, chloroform, chlorobenzene or other halogenated hydrocarbon compound, diethyl ether, tetrahydrofuran or other ether compound, acetonitrile andthe propionitrile or other nitrile compound etc. In addition, these mixed solvent and these and also mixed solvent of water canuse. for example potassium hydroxide, sodium hydroxide, potassium carbonate or other inorganic base, triethylamine and pyridine or other organic base can be used as base. When triethylamine and pyridine or other organic base are used, using for large excess, it can also use as solvent. You can use quantity of base for chemically stoichiometric amount or excess, butthe preferably chemically stoichiometric amount 1.0 to 5.0 time excessive quantity is used from that. From -20 °C to do with temperature range to boiling point of solvent it is possible reaction, but it is a range of preferably - 5 °C to 50 °C. It is possible also to add 4-di methylamino pyridine or other catalyst in reaction system.

[0018] R6 is anything other than inside hydrogen atom of afore mentioneddefinition in compound of General Formula (1) as for compound where, It can also obtain halide and for example cyano gene bromide which underexisting of base like alkali metal hydride (Such as sodium hydride), among them such as inert solvent for example tetrahydrofuran , dioxane , ether , N, N-dimethylformamide and dimethyl sulfoxide, are displayed compound of General Formula (1)when R6 is hydrogen atom, with type X - R6 (X shows halogen atom, R6 shows aforementioned ones.) and fit, halogenomethyl thio halide and allyl bromide etc and, by reacting with preferably - 10 to 50 °C.

[0019] It can acquire compound of General Formula (2) which is used in order toproducing compound of General Formula (1), with benzoyl halide which is displayed with general formula (4) which corresponds with hydrazine which is displayed with general formula (6), by reacting. said reaction is illustrated on description below.

[0020]

【化10】

$$A \xrightarrow{Q} X + R^7-NHNH-R^8-HCI \longrightarrow R^4$$
(4) (6)

【OO21】 (式中、Xはハロゲン原子であり、A、 R^1 、 R^2 、 R^6 、 R^7 は前記と同じ意味を表わす。)

該反応の条件、例えば溶媒、反応温度などは一般式(2)と一般式(3)の化合物との反応に用いられる条件と同じである。

【0022】また、一般式(2)の化合物は、下記反応式に従って、一般式(7)の化合物を一般式(8)のケトンまたはアルデヒドと反応させ、得られた中間生成物(9)を不活性溶媒中還元剤と反応させることによっても得ることができる。一般式(7)と(8)の化合物の反応は、アルコール系化合物(メタノール、エタノール等)、炭化水素系化合物(トルエン、ベンゼン等)、エーテル系化合物(テトラヒドロフラン等)などの溶媒中で場合により酢酸やトリフルオロ酢酸のような有機酸の存在下で行う。また、化合物(9)の還元は、シアノ水素化ホウ素ナトリウム、水素化ホウ素ナトリウム、水素化リチウムアルミニウム等の還元剤を用いて、場合により酢酸、トリフルオロ酢酸等の触媒を存在させて、アルコール、エーテル等の不活性溶媒中で実施する。

[0023]

【化11】

【0024】(式中、A、 R^1 、 R^2 、 R^6 は前記と同じ意味を表わし、 R^{10} は水素原子またはアルキル基を表わし、 R^{11} はアルキル基を表わす。ただし R^{10} と R^{11} の炭素原子の総数は $2\sim9$ である)

また、一般式(1)で表わされる化合物は、一般式(4)で表わされるベンゾイルハライドと、下記一般式(5)で表わされるヒドラジドとを反応させることによっても得ることができる。該反応を下記に図示する。

[Chemical Formula 10]

[0021] (In Formula, X is halogen atom, A, R1, R2, the R6 a nd R7 display same meaning as description above.)

Condition of said reaction, as for for example solvent and reaction temperature etc it is the same as condition which is used for reaction with General Formula (2) and compound of general formula (3).

[0022] In addition, compound of General Formula (2), followin g to below-mentionedreaction scheme, by reacting with reductant in inert solvent can acquire intermediate product (9)which reacting with ketone or aldehyde of General Formula (8), acquires compound of general formula (7). It reacts compound of general formula (7) and (8), alcohol compound (Such as methanol and ethanol), hydrocarbon compound (Such as toluene and benzene), in ether compound (Such as tetrahydrofuran) or other solvent under existing of organic acid like acetic acidand trifluoroacetic acid with when. In addition, reduction of compound (9), existing, executes acetic acid andthe trifluoroacetic acid or other catalyst in alcohol and ether or other inert solvent making use of sodium cyanoborohydride, the sodium borohydride and lithium aluminum hydride or other reductant, with in case.

[0023]

[Chemical Formula 11]

[0024] (In Formula, A, R1, R2 and R6 displaythe same mea ning as description above, R10 displays hydrogen atom or alkyl group, the R11 displays alkyl group. However total number of carbon atom of R10 and R11 is 2 to 9.)

In addition, by reacting it can acquire compound which is display edwith General Formula (1), with benzoyl halide which is displayed with general formula (4) and the hydrazide which is displayed with below-mentioned general formula (5). said

reaction is illustrated on description below.

[0025]

【化12】

$$A \longrightarrow \begin{array}{c} P^{7} & P^{3} & P^{3} & P^{3} & P^{4} & P^{5} & P^{$$

【 O O 2 6 】(式中、A 、R¹ ~R⁷ およびXは前記と同じ 意味を表わす。)

該反応の条件、例えば溶媒、反応温度等は一般式(2)の化合物と一般式(3)の化合物との反応に用いられる条件と同じである。

【〇〇27】一般式(1)の化合物あるいは一般式(2)の 化合物の製造時における反応混合物は充分な時間撹拌され、 通常の後処理、例えば抽出、水洗、乾燥、溶媒留去等の過程 により目的物が回収される。簡単な溶媒洗いをするだけで充 分な場合が多いが必要があれば再結晶あるいはカラムクロマ トグラフィーにより精製を行うことができる。

【0028】なお、一般式(1)で表わされる化合物の原料である一般式(4)で表わされる化合物は、一般式(4)の6一位が一COX基の代りに例えば臭素原子である化合物をCA114:P6501(EP355,827)またはCA:P94316(USP5,169,860)の方法に準じて製造し、次いで例えばCA94:P174860(USP4,238,487)の方法に準じてグリニャール反応を行なわせることによって製造することができる。

【 O O 2 9 】本発明の一般式 (1) の化合物を使用する場合、使用目的に応じてそのままかまたは効果を助長あるいは安定にするために農薬補助剤を混用して、農薬製造分野において一般に行われている方法により、粉剤、細粒剤、粒剤、水和剤、顆粒水和剤、水田用投げ込み剤(水中或は水面拡散型の塊状剤またはパック剤)、フロアブル剤、乳剤、マイクロカプセル剤、油剤、エアゾール、加熱くん蒸剤(蚊取線香、電気蚊取など)、フォッギングなどの煙霧剤、非加熱くん蒸剤、毒餌等の任意の製剤形態の組成物にして使用できる。

[0025]

[Chemical Formula 12]

[0026] (In Formula, A, R1 to R7 and X display same meaning a s description above.)

Condition of said reaction, as for for example solvent and reaction temperature etc it is the same as condition which is used for reaction with compound of the General Formula (2) and compound of general formula (3).

[0027] Reaction mixture at time of production of compound of compound or the General Formula (2) of General Formula (1) is agitated satisfactory time, object compound recovers by the conventional post-treatment, for example extraction, water wash, drying and solvent removal or other process. You just wash simple solvent in satisfactory case it is many, if but there is anecessity, it is possible to refine with recrystallization or column chromatography.

[0028] Furthermore, compound which is displayed with general formula (4) which is astarting material of compound which is displayed with General Formula (1) can produce thecompound where 6 - rank of general formula (4) is for example bromine atom in place of - CO X groupaccording to method of CA114:P6501(EP 355,827) or CA:P94 31 6(United States Patent 5,169,860), can produce the Grignard reaction litto by doing next according to method of for example CA94:P174860(United States Patent 4,238,487).

[0029] Compound of General Formula (1) of this invention is u sed when, That way according to use objective or effect in order to make assistor stability pesticide adjuvant blend doing, You can use in composition of formulation type of fogging or other fume agent, no heating fumigation agent and the poison bait or other option with method which is done generally in pesticide manufacturing field, powder, the fine granule, granule, wettable powder, granule wettable powder and rice paddy throwing inagent (bulk agent or pack of underwater or water layer scattering type), flowable, emulsion, microcapsule, oil, aerosol and the heating fumigation agent (Such as mosquito-repellant incense and electric mosquito trap).

【0030】これらの種々の製剤は実際の使用に際しては、 直接そのまま使用するか、または水で所望の濃度に希釈して 使用することができる。

【〇〇31】ここに言う農薬補助剤としては担体(希釈剤)及びその他の補助剤、例えば展着剤、乳化剤、湿展剤、分散剤、固着剤、崩壊剤等を挙げることができる。液体担体としては、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系化合物、ブタノール、オクタノール、グリコールなどのアルコール系化合物、アセトン等のケトン系化合物、ジメチルホルムアミドなどのアミド系化合物、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド系化合物、燐酸トリキシレニル等の燐酸エステル系化合物、フタル酸ジイソプロピル等のフタル酸エステル系化合物、アジピン酸ジオクチル等のアジピン酸エステル系化合物、メチルナフタレン、シクロヘキサノン、動植物油、脂肪酸、脂肪酸エステルなどまたは灯油、軽油等の石油分留物や水などが挙げられる。

【0032】固体担体としてはクレー、カオリン、タルク、 珪藻土、シリカ、炭酸カルシウム、モンモリロナイト、ベン トナイト、長石、石英、アルミナ、鋸屑等が挙げられる。

【 0 0 3 3 】また乳化剤または分散剤としては通常界面活性剤が使用され、例えば高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ラウリルベタインなどの陰イオン系界面活性剤、陽イオン系界面活性剤が挙げられる。

【0034】また、展着剤としてはポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルエーテルなどが挙げられ、湿展剤としてはポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルジアルキルスルホサクシネート等が挙げられ、崩壊剤としてはリグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウム等が挙げられる。

【〇〇35】さらにこれら本発明化合物は2種類以上の配合使用によって、より優れた殺虫力を発現させることも可能であり、また他の生理活性物質、例えばアレスリン、フタルスリン、デルタメスリン、フェンバレレート、シクロプロトリンなどのピレスロイド及び各種異性体、除虫菊エキス、DDVP(ジクロルボス)、フェニトロチオン、ダイアジノン、テメホス等の有機リン系殺虫剤、NAC(カルバリル)、PHC(プロポキスル)、BPMC(フェノブカルブ)、ピリミカルブ、カルボスルファンなどのカーがメート系殺虫剤、除草剤、植物成長調節剤、肥料、BT剤、昆虫ホルモン剤その他の農薬などと混合することによりさら、ホルモン剤その他の農薬などと混合することによりさら、カの優れた多目的組成物を作ることもでき、また相乗効果も期待できる。

[0030] As for these various formulation you can use directly t hat way at timeof actual use, with water can dilute in desired density and can use.

[0031] Support (diluent) and other auxiliary agent, for examp le spreader, emulsifier, wet spreading agent, the dispersant, fixative and disintegrating agent etc can be listed as pesticide adjuvant which issaid here. As liquid carrier, toluene, xylene or other aromatic hydrocarbon-based compound, butanol, octanol, glycol or other alcohol compound, the acetone or other ketone compound, dimethyl formamide or other amide type compound and dimethyl sulfoxide or other sulfoxide compound, phosphoric acid trixylenyl or other phosphate ester compound, diisopropyl phthalate or other phthalic acid ester type compound, methyl naphthalene, cyclohexanone, animal or vegetable oil, aliphatic acid and fatty acid ester etc or you can list illuminating oil, gas oil or other petroleum fractional distillate and water etc.

 $[0032]\ You\ can\ list\ clay\ ,\ kaolin\ ,\ talc\ ,\ diatomaceous\ earth\ ,\ silica\ ,the\ calcium\ carbonate\ ,\ montmorillonite\ ,\ bentonite\ ,\ feldspar\ ,\ quartz\ ,\ alumina\ and the\ sawdust\ etc\ as\ solid\ carrier.$

[0033] In addition as emulsifier or dispersant surfactant is used u sually, canlist for example higher alcohol sodium sulfate, stearyl trimethyl ammonium chloride, polyoxyethylene alkyl phenyl ether, lauryl betaine or other anionic surfactant, cationic surfactant, both ionssurfactant and nonionic surfactant.

[0034] In addition, you can list polyoxyethylene nonyl phenyl ether and polyoxyethylene lauryl ether etc as spreading agent, you can list polyoxyethylene nonyl phenyl ether dialkyl sulfosuccinate etc as wet spreading agent, you can list sodium lignin sulfonate andthe sodium lauryl sulfate etc as disintegrating agent.

[0035] Furthermore as for these the compound of this inventio n in combination use of 2 kinds or more depending, Also being possible to reveal insecticidal strength which is superior to be, In addition other physiologically active substance, for example allethrin, phthalthrin, permethrin, deltamethrin, fenvalerate, cycloprothrin or other pyrethroid and various isomer, Furthermore it is possible also pyrethrum extract, DDVP(dichlorvos), fenitrothion, the diazinon, temephos or other organophosphorus type insecticide, NAC(carbaryl), PHC (propoxur), BPMC (fenobucarb), pirimor, the carbosulfan or other carbamate type insecticide and other insecticide, by mixing with acaricide or microbicide, the nematicide, herbicide, plant growth regulator, fertilizer, BT agent and insect hormone otherpesticide etc, in addition can expect also synergistic effect to make multipurpose compositionwhere effectiveness is superior.

【0036】さらに、例えばピペロニルブトキサイド、サルホキサイド、サフロキサン、NIA-16824(O-sec-ブチル-O-プロパルギルフェニルホスフェート)、<math>DEF(S,S,S-F)ブチルホスホトリチオエート)などのピレスリン用共力剤として知られているものを加えることにより、この効果を高めることもできる。

【0037】また、本発明化合物は光、熱、酸化等に安定性が高いが、必要に応じ酸化防止剤あるいは、紫外線吸収剤、例えばBHT、BHAのようなフェノール系化合物、αーナフチルアミンなどのアリールアミン系化合物あるいはベンゾフェノン系化合物を安定剤として適宜加えることによって、より効果の安定した組成物を得ることができる。

【0038】本発明組成物中における有効成分含有量は製剤 形態、施用方法その他の条件により異なり、場合によっては 有効成分化合物のみでよいが通常は0.02~95%(重量) り好ましくは0.05~80%(重量)の範囲である。

【0039】本発明の組成物の使用量は削形、施用する方法、時期、その他の条件によって変わるが、農園芸用剤、森林妨害虫用剤及び牧野害虫用剤は通常10アール当り有効成分量で0.5~300g、好ましくは2~200gが使用され、衛生妨害虫用剤は通常1m²当り有効成分量で1~200mg、好ましくは1~100mgが使用される。たとえば粉剤は10アール当り有効成分量で1~120g、粒剤は有効成分量で5~300g、また乳剤、水和剤、フロアブル剤、顆粒水和剤、EW(emulsion in water)剤は有効成分量で0.5~100gの範囲である。しかしながら特別の場合には、これらの範囲を越えることが、また下回ることが可能であり、また時には必要ですらある。

【0040】また、寄生虫の防除のために本発明の一般式(1)の化合物を使用する場合、体重につき0.1~200mg/kgに相当する投与量で用いることができる。与えられた状態に対する正確な投与量は、日常的に決定することができ、種々の因子、例えば用いられる物質、寄生虫の種類、用いられる配合及び寄生虫にかかったヒトあるいは動物の状態に依存する。

【0041】本発明の殺虫組成物の適用できる具体的な害虫 名を挙げる。

【0042】半翅目 (Hemiptera) から例えばツマグロヨコパイ (Nephotettix cinctice ps)、セジロウンカ (Sogatella furcifera)、トピイロウンカ (Nilaparvata lu

[0036] Furthermore, it is possible also to raise this effect, for example piperonyl butoxide, the sulfoxide, sufroxane and NIA - 16824 (O - s - butyl - O - propargyl phenyl phosphate), as synergistic agent for DEF(S,S,S - tributyl phospho tri thioate) or other pyrethrin byadding those which are informed.

[0037] In addition, from composition which effect stabilizes can be acquired by as needed adding with phenol type compound, - naphthyl amine or other aryl amine type compound or benzophenone type compound like antioxidantor ultraviolet absorber, for example BHT and BHA as for the compound of this invention stability it ishigh but, according to need to light, heat and oxidation etc as the stabilizer.

[0038] Active ingredient content in in this invention compositi on differs depending upon formulation type and the application method other condition , only active ingredient compound may be depending upon in casebut it is a range of 0.02 to 95 % (weight) preferably 0.05 to 80 % (weight) usually.

[0039] As for usage of composition of this invention formulati on and application themethod of doing. It changes depending upon time and other condition, but the horticultural agent, agent for forest bogging insect and agent for pasture pest the 0. 5 to 300g and preferably 2 to 200g are usually used with per 10 ares amount of active ingredient, agent for the hygiene bogging insect 1 to 200 mg and preferably 1 to 100 mg is usually used with 1 per m2 amount of active ingredient. As for for example powder with per 10 ares amount of active ingredient as for 1 to 120g and granule withthe amount of active ingredient 5 to 300g, in addition as for emulsion, wettable, the flowable, granule wettable and EW(emulsion in water) agent it is a range of 0.5 to 100g with theamount of active ingredient. But when it is special, to exceed these ranges, in addition being lessthan it is possible, in addition is necessary at time and othersit is.

[0040] In addition, when compound of General Formula (1) of this invention is used forpreventing parasite, you can use with dose which is suitable to the 0.1 to 200 mg/kg concerning body weight. As for correct dose for state which is given, it is possible, to decide daily, various factor and for example types of substance and the parasite which are used, it depends on state of human or theanimal which depended on combination and parasite which are used.

[0041] Exemplary insect pest name which can apply insecticida 1 composition of this invention is listed.

[0042] From Hemiptera (Hemiptera) for example Nephotettix cincticeps (Uhler) (green rice leafhopper) (Nephotettix cincticeps), Sogatella furcifera (Horvath) (whitebacked rice planthopper) (Sogatella furcifera), Nilaparvata lugens (Stal)

gens)、ヒメトビウンカ(Laodelphax st riatellus)、ホソヘリカメムシ(Riptort us clavatus)、ミナミアオカメムシ(Neza ra viridula)、ナシグンバイ(Stephan itisnashi)、オンシツコナジラミ(Triale urodes vaporariorum)、ワタアブラム シ(Aphis gossypii)、モモアカアブラムシ (Myzus persicae) またはヤノカネカイガラ ムシ(Unasqis yanonensis)、鱗翅目(Lepidoptera) から例えばキンモンホソガ (Ph yllonorycter ringoneella),⊐ ナガ (Plutella xylostella)、ワタミ ガ (Promalactis inonisema)、コカ クモンハマキ (Adoxophyes orana)、マメ シンクイガ (Leguminivora glyciniv orella)、コブノメイガ(Cnaphalocroc is medinalis)、二カメイガ(Chilo s uppressalis)、アワノメイガ (Ostrini a furnacalis)、ヨトウガ(Mamestra brassicae)、アワヨトウ(Pseudalet ia separata)、ハスモンヨトウ(Spodop tera litura)、イネツトムシ(Parnara guttata)、モンシロチョウ(Pieris ra pae crucivora)、ヘリオチスガ(Helio thisspp.)、ヤガ (Agrotis spp.)ま たはHelicoverpa spp. 、鞘翅目(Cole optera) から例えばドウガネブイブイ(Anomal a cuprea)、マメコガネ(Popillia ja ponica)、イネゾウムシ(Echinocnemus soquameus)、イネミズゾウムシ(Lissor hoptrus oryzophilus)、イネドロオイ ムシ (Oulema oryzae)、ヒメマルカツオブシ ムシ(Anthrenus verbasic)、コクヌス h (Tenebroides mauritanicus) 、コクゾウムシ(Sitophilus zeamis)、 ニジュウヤホシテントウ(Henosepilachna vigintioctopunctata)、アズキゾウム シ(Callosobruchus chinensis) 、マツノマダラカミキリ (Monochamus alte rnatus)、ウリハムシ(Aulacophora f emoralis)、レプチノタルサ・テセムリネアタ(L eptinotarsadecemlineata)、フェ ドン・コクレアリアエ (Phaedon cochlear ias) またはジアブロチカ (Diabrotica sp p.)、膜翅目(Hymenoptera)として例えばカ ブラハバチ (Athalia rosae japonen sis) またはルリチュウレンジハバチ (Arge sim illis)、双翅目(Diptera)として例えばネッ タイイエカ (Culex pipiens faigans)、ネッタイシマカ(Aedes aegypti)、ダイ ズサヤタマバエ (Asphondy liaspp.)、タネ バエ (Hylemya platura)、イエバエ (Mu sca domestica vicina)、ウリミバエ

(brown rice planthopper) (Nilaparvata lugens), Laodelphax striatellus (Fallen) (small brown planthopper) (Laodelphax striatellus). Riptortus clavatus [Thunberg] (bean bug) (Riptortus clavatus). Nezare viridula [Linnaeus] (southern green stink bug) (Nezara viridula). Stephanitis nashi Esaki et Takeya (pear lace bug) (Stephanitis nashi), Trialeurodes vaporariorum (Westwood) (greenhouse whitefly) (Trialeurodes vaporariorum), Aphis gossypii Glover (cotton aphid) (Aphis gossypii), Myzus persicae (Sulzer) (green peach aphid) (Myzus persicae) or Unaspis yanonensis (arrowhead scale) (Unaspis yanonensis), From Lepidoptera (Lepidoptera) for example Phyllonorycter ringoniella (Matsumura) (apple leafminer) (Phyllonorycter ring oneella), Plutella xylostella (Linnaeus) (diamondback moth, cabbage moth) (Plutella xylostella). Promalactis inonisema (Promalactis inonisema), Adoxophyes orana (Adoxophyes orana), Leguminivora glycinivorella [Matsumura] (soyean pod borer) (Leguminivora glycinivorella), Cnaphalocrocis medinalis (Guenee) (rice leafroller) (Cnaphalocrocis medinalis), Chilo suppressalis (Walker) (Asiatic rice borer) (Chilo suppressalis), Ostrinia furnacalis [Guenee] (oriental corn borer) (Ostrinia furna cal is), Mamestra brassicae (Linnaeus) (cabbage armyworm) (Mamestra brassicae), Pseudaletia Separata [Walker] (armyworm) (Pseudaletia separ ata), Spodoptera litura (Fabricus) (tobacco cutworm) (Spodoptera litura), Parnara guttata (rice skipper) (Parnara guttata (rice skipper)), Pieris rapae crucivora Boisduval (common white, common cabbage worm) (Pieris rapae crucivora), Heliothis moth (Heliothisspp.), Agrotis sp. (Agrotis spp.) or Helicoverp asp p., From Coleoptera (Coleoptera) for example Anomala cuprea Hope (cupreous chafer) (Anomala cuprea), Popillia japonica Newmann (Popillia japonica), Echinocnemus squameus (Billberg) (rice curculio) (Echinocnemus soquameus), Lissorhoptrus oryzophilus Kuschel (rice water weevil) (Lissorhoptrus oryzophilus), Oulema oryzae (Kuwayama) (rice leaf beetle) (Oulema oryzae), Anthrenus verbasci [Linnaeus] (varied carpet beetle) (Anthrenus verbasic). Tenebroides mauritanicus (Linnaeus) (bread beetle) (Tenebroides mauritanicus), Sitophilus zeamais (maize weevil) (Sitophilus zeamis), Epilachnia vigintiooctopunctata (Fabricius) (twenty-eightspotted ladybird) (Henosepilachna vigintioctopunct ata), Callosobruchus chinensis (Linnaeus) (adzuki bean weevil) (Callosobruchus chinensis), Monochamus alternatus Hope (Japanese pine sawyer) (Monochamus alternatus), Aulacophora femoralis (Motschulsky) (cucurbit leaf beetle) (Aulacophora femoralis), Leptinotarsa テセム jp9 ネアタ (Leptinotarsa decemlineata), Phaedon cochleariae (mustard beetle) (Phaedon cochleariae (mustard beetle)) or Diabrotica (Diabrotica spp.), As Hymenoptera (Hymenoptera) for example Athalia rosae ruficornis Jakovlev (cabbage sawfly) (Athalia rosae japone ns is) or Arge similis [Vollenhoven] (azalea argid sawfly) Tenthredinidae (Arge si mil lis), As Diptera (Diptera) for example Culex pipiens fatigans

(Dacus cucurcitae)、イネハモグリバエ (Agromyza oryzae) またはキンバエ(Lu cllia spp.)、隠翅目(Aphaniptera)として例えばヒトノミ(Pulex irritans) 、ケオブスネズノミ(Xenopsylla cheopi s) またはイヌノミ (Ctenocephalides c anis)、総翅目(Thysanoptera)として例 えばチャノキイロアザミウマ(Scirtothrips dorsalls)、ネギアザミウマ(Thrips ta baci)、ミナミキイロアザミウマ(Thrips pa lmi) またはイネアザミウマ(Baliothrips biformis)、シラミ目(Anoplura)として 例えばコロモジラミ (Pediculs humanus corporis) またはケジラミ (Pthirus p ubis)、チャタテムシ目(Psocoptera)とし て例えばコチャタテ (Trogium pulsatori um) またはヒラタチャタテ (Liposcelis bo strychophilus)、直翅目(Orthopte ra)として例えばケラ (Gryllotalpa afr icana)、トノサマバッタ(Locusta migr atoria)、コバネイナゴ(Oxya yezoens is)、チャバネゴキブリ (Blattella germ anica) またはクロゴキブリ(Periplaneta fuliginosa).

【0043】また、本発明の殺虫組成物が適用できるヒトを 苦しめる最も重要な寄生虫およびそれによる病気を次に要約 するが、これらに限定されるものではない。

[0044]

obium

)

名 病

生

Illness name

[0044]

organism

Bilharziosisまたは Schistosom a mansoni

S. Japonicu

Schistosomiasis m

S. Haemat

(住血吸虫、吸虫

S.Haematobium

(Residence blood sucking/absorbing insect a

nd sucking/absorbing insect)

Schistosomiasis S.Japonicum

Ancyclostomiasis Necator am ericanus,

An cyc lostomiasis Necator americanus,

Bil harziosis or Schistosoma mans oni

ISTA's Paterra(tm), Version 1.5 (There may be errors in the above translation. ISTA cannot be held liable for any detriment from its use. WWW: http://www.intlscience.com Tel:800-430-5727)

(Agromyza oryzae) orthe Lucilia (Lucilia spp.) and Siphonaptera (Aphaniptera) for example Pulex irritans (human flea) (Pulex irritans), as oa Juniperus rigida Sieb. et Zucc. flea (Xenopsylla cheopis (Oriental rat flea)) or Ctenocephalides canis (Ctenocephalides canis) and Thysanoptera (Thysanoptera) as for example Scirtothrips dorsalis Hood (yellow tea thrips) (Scirtothrips dorsalls), Thrips tabaci Lindeman (onion thrips) (Thrips tabaci), Thrips palmi Karny (Thrips palmi) or Stenchaetothrips biformis [Bagnall] (rice thripsa) (Baliothrips biformis) and the Anoplura (Ano pl ura) as for example Trogium pulsatorium [Linnaeus] (larger pale booklouse) (Trogium pulsatorium) or Liposcelis bostrychophilus Badonnel (Liposcelis bostrychophilus) and Orthoptera (Orthoptera) as for example Pediculus humanus corporis (body lice) (Pediculs humanus corporis) or the Phthirus pubis (Phthirus pubis) and Psocoptera (booklice) (Psocoptera) for example Gryllotalpa sp. (mole cricket) (Gryllotalpa africana), Locusta migratoria [Linnaeus] (Asiatic locust) (Locusta migratoria), Oxya yezoensis Shiraki (rice grasshopper) (Oxya yezoensis), Blattella germanica [Linnaeus] (German cockroach) (Blattella germanica) or the Periplaneta fuliginosa [Serville] (smokybrown cockroach) (Periplaneta fuliginosa). [0043] In addition, human which can apply insecticidal composi

(Wiedemann-House mosquito) (Culex pipiens faiga ns), As Aedes aegypti (Aedes aegypti), Asphondylia sp. (soybean pod

gall midge) (Asp hondyli asp p.), Hylemia platura (Hylemya

platura), Muscidae (house flies) (Musca domestica vicina),

cucurcitae), Agromyza oryzae (Munakata) (rice leafminer)

Dacus (Zeugodacus) cucurbitae Coquillett (melon fly) (Dacus

tion of this invention istormented, most important parasite and disease due to that aresummarized next, but it is not something which is limited in these.

P.15

Ancyclos An cyc lostoma duo de toma duode-Nale nale (鉤虫、線虫) (Hook insect, nematode) Ascariasis Ascaris Ascariasis Ascaris lumbri cold umbricold-(回虫 (Ascaridae and nematode) Fs e s 、線虫) Filariasistht Wuchereria Filariasis or Wuchereria bancrofbancrofelephantiasis Elep ha ntiasis t i Brugia Brugia malayi a layi (線虫) (nematode) Onchoceriasist to Onchocerro Onchoceriasis or Onchocerrca volvul a volvul— (線虫) River blinduess us (nematode) river blinduess u s Loiasis Loa loa Loiasis (眼糸状虫、線虫 (Eye Filarioidea, nematode)) [0045] [0045]

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発

明はこれらのみに限定されるものではない。

【0046】製造例1

エチル 7ーメチルベンゾフランー6ーカルボキシレートの製造:エチル 3ー(2,2ージエトキシエトキシ)ー2ーメチルベンゾエート 7.1 g を塩化メチレン 100m l に溶解し0°Cにて四塩化スズ(1M、塩化メチレン溶液)48m l を滴下した。同温にて15分間撹拌した後、水中に注ぎ塩化メチレンにて抽出を行い、飽和NaHCO3 水溶液おしび飽和食塩水にて洗浄を行った。さらに無水硫酸マグネシウムにて乾燥した後、減圧下溶媒留去を行い、得られる残留物をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、n-へキサンー酢酸エチル(95:5,v/v)流分より目的とするエチル 7ーメチルベンゾフランー6ーカルボキシレート1g(20%)を得た。

[Working Example(s)] Listing Working Example below, you ex plain this invention, but this invention is notsomething which is limited in only these.

[0046] Production Example 1

Production: ethyl 3 - (2,2-di ethoxy ethoxy) - 2 - methyl benz oate 7.1g of ethyl 7 - methyl benzofuran - 6 - carboxylate was melted in methylene chloride 100 ml and thetin tetrachloride (1M) and methylene chloride solution) 48 ml was dripped with 0 °C . 15 min after agitating, you poured to underwater with same temperature and extracted with methylene chloride, washed with saturated NaHCO3 aqueous solution and saturated saline . Furthermore after drying with anhydrous magnesium sulfate, it did solvent removal under the vacuum, residue which is acquired, on silica gel column chromatography, ethyl 7 - methyl benzofuran - 6 - carboxylate 1g(20 %)which is made object from n-hexane - ethyl acetate (95:5,v/v) fraction attached it acquired.

 $\{0047\}^1$ H-NMR (CDCI₃) δ (ppm) :| 1. 41 (3H, t, J=7. 3Hz), 2. 81 (3H, s), 4. 38 (2H, q, J=7. 3Hz), 6. 77 (1H, d, J=2. 2Hz), 7. 42 (1H, d, J=8. 3Hz), 7. 72 (1H, d, J=2. 2Hz), 7. 87 (1H, d, J=8. 3Hz)

製造例2

ベンゾフランー6ーカルボキシリックアシッドの製造:マグネシウム片 87mgに6ーブロモベンゾフラン 700mgの無水THF溶液10mlおよび触媒量のヨウ素を加えてGrignard化合物を形成させ、さらに30分間加熱還流した。ついでこの混合物を室温にまで冷却した後ドライアイス中にゆっくりと加え、室温に戻した後5%塩酸水にて酸性とした。酢酸エチルにて抽出を行い、飽和食塩水にて洗浄を行った後無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。減圧下溶媒留去を行い、得られる残留物をヘキサンにて洗浄を行うことにより目的とするベンゾフランー6ーカルボキシリックアシッド 220mg (38%) を得た。

[0048] ^{1}H -NMR (CDC $^{1}3$) δ (ppm) :| 6. 86 (1H, d, J=1. 8Hz), 7. 68 (1H, d, 8. 5Hz), 7. 80 (1H, d, J=1. 8Hz), 8. 03 (1H, d, J=8. 5Hz), 8. 29 (1H, s)

製造例3

N-7-メチルベンゾフラン-6-カルボ-N'-tert -ブチル-N'-3, 5-ジメチルベンゾイルヒドラジンの 製造:

(1) 7ーメチルペンゾフランー6ーカルボキシリックアシッド 350mgおよび塩化チオニル 1mlをクロロホルム 10mlに加え2時間加熱還流した。過剰の塩化チオニル および溶媒を留去し、塩化メチレン2mlに溶解した。ハー tertーブチルーN-3,5ージメチルベンゾイルヒドラジン 437mgをピリジン 6mlに溶解し、氷冷下先の7ーメチルペンゾフランー6ーカルボニルクロライドの塩化メチレン溶液を滴下した。2時間撹拌した後、水中に注ぎ塩化メチレンにて抽出を行った。有機層を5%塩酸水および飽和食塩水にて洗浄し、無水硫酸マグネシウムにて乾燥した。減圧下溶媒を留去した後、得られた結晶をジエチルエーテルにて洗浄し目的とするN-7-メチルペンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルーN'-3,5ージメチルペンゾイルヒドラジン200mg(収率27%)を得た。

【0049】(2) 7-メチルベンゾフランー6ーカルボキシリックアシッド 410mgおよび塩化チオニル 0.34mlを塩化メチレン 5mlに加え2時間加熱還流した。過剰の塩化チオニルおよび溶媒を留去し、塩化メチレン2ml

[0047] 1H-nmr (CDCl3) (ppm):1.41(3H,t,J=7.3 Hz), 2.81(3 H,s), 4.38(2H,q,J=7.3 Hz), 6.77(1H,d,J=2.2 Hz), 7.42(1H,d,J=8. 3 Hz), 7.72(1H,d,J=2.2 Hz) and 7.87(1H,d,J=8.3 Hz)

Production Example 2

Forming Grignar deuterated compound in production: magnesium one 87 mg of benzofuran - 6 - carboxylic acidincluding anhydrous THF solution 10 ml of 6 - bromo benzofuran 700 mg and iodine of catalyst amount, furthermore 3 0 min heating and refluxing it did. Next, after cooling this mixture to room temperature, it added slowly in thedry ice, after resetting to room temperature, it made acidity with 5 % hydrochloric acid. It extracted with ethyl acetate, after washing with saturated saline, it driedwith anhydrous magnesium sulfate. solvent removal under vacuum was done, benzofuran - 6 - carboxylic acid 220 mg (38 %) which designates residue which is acquired as object by washing with the hexane was acquired.

[0048] 1H-nmr (CDCl3) (ppm):6.86(1H,d,J=1.8 Hz), 7.68(1H,d,8.5 Hz), 7.80(1H,d,J=1.8 Hz), 8.03(1H,d,J=8.5 Hz) and 8. 29(1H,s)

Production Example 3

Production of N-7 - methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-bu tyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine:

(1) 2 hours heating and refluxing it did 7 - methyl benzofuran - 6 - carboxylic acid 350 mg and thionyl chloride 1 ml in addition to chloroform 10 ml. It removed thionyl chloride and solvent of excess, melted in methylene chloride 2 ml. N - t-butyl - N - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine 437 mg was melted in pyridine 6 ml, methylene chloride solution of 7 - methyl benzofuran - 6 - carbonyl chlorideahead under ice cooling was dripped. 2 hours after agitating, you poured to underwater and extracted withthe methylene chloride. You washed organic layer with 5 % hydrochloric acid, and saturated saline dried with the anhydrous magnesium sulfate. After removing solvent under vacuum, crystal which isacquired was washed with diethyl ether and N - 7 - methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine 200 mg (yield 27 %)which is made object was acquired.

[0049] (2) 2 hours heating and refluxing it did 7 - methyl benz ofuran - 6 - carboxylic acid 410 mg and thionyl chloride 0.34 ml in addition to methylene chloride 5 ml. It removed thionyl chloride and solvent of excess, melted in methylene chloride 2

P.17

に溶解した。tertーブチルヒドラジン塩酸塩 1.45 gを塩化メチレン 10mlと10%水酸化ナトリウム水溶 液 6.5mlの混合溶液に加え、氷冷下先のフーメチルベ ンゾフランー6ーカルボニルクロライドの塩化メチレン溶液 を滴下した。2時間撹拌した後、水中に注ぎ塩化メチレンに て抽出を行った。有機層を飽和食塩水にて洗浄し、無水硫酸 マグネシウムにて乾燥した後減圧下溶媒の留去を行い、目的 とするN-7-メチルペンゾフラン-6-カルボーN'-t ertーブチルヒドラジン 380mg(66%)を得た。 次にN-7-メチルベンゾフラン-6-カルボーN'-te rtーブチルヒドラジン 380mgを塩化メチレンに溶解 し、ピリジン 0.25mlおよび触媒量の4ージメチルア ミノピリジンを加え、氷冷下3、5-ジメチルベンゾイルク ロライド 285mgを塩化メチレンに溶解して滴下した。 室温にて2時間撹拌した後水中に注ぎ、塩化メチレンにて抽 出を行った。有機層を5%塩酸水および飽和食塩水にて洗浄 し、無水硫酸マグネシウムにて乾燥を行った。減圧下溶媒を 留去した後、得られた結晶をヘキサンおよび酢酸エチルの混 合溶液にて洗浄を行い、目的とするN-フーメチルベンゾフ ラン-6-カルボーN'-tert-ブチル-N'-3,5 ージメチルベンソイルヒドラジン 380mg (収率65%)を得た。

[0050] $^{1}H-NMR$ (CDCI $_{3}$) δ (ppm) :| 1. 63 (9H, s) , 2. 27 (9H, s) , 6. 57 (1H, d, J=7. 9Hz) , 6. 71 (1H, d, J=2. 0Hz) , 6. 99 (1H, br s) , 7. 08 (2H, br s) , 7. 28 (1H, d, J=5. 9Hz) , 7. 66 (1H, d, J=2. 0Hz)

製造例5

Nーベンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルー N'-3,5-ジメチルベンゾイルヒドラジンの製造:ベン ゾフランー6ーカルボキシリックアシッド 220mgおよ び塩化チオニル 0.2mlを塩化メチレン 2mlに加え 2時間加熱還流した。過剰の塩化チオニルおよび溶媒を留去 し、塩化メチレン1mlに溶解した。tert-ブチルヒド ラジン塩酸塩 850mgを塩化メチレン 5mlと10% 水酸化ナトリウム水溶液 4mlの混合溶液に加え、氷冷下 先のベンゾフランー6ーカルボニルクロライドの塩化メチレ ン溶液を滴下した。2時間撹拌した後、水中に注ぎ塩化メチ レンにて抽出を行った。有機層を飽和食塩水にて洗浄し、無 水硫酸マグネシウムにて乾燥した後減圧下溶媒の留去を行い 、目的とするNーベンゾフランー6ーカルボーN'ーter tーブチルヒドラジン 220mg(70%)を得た。次に Nーベンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルヒ ドラジン 220mgを塩化メチレン 20mlに溶解し、 ピリジン 0. 15mlおよび触媒量の4ージメチルアミノ ピリジンを加え、氷冷下3、5-ジメチルベンゾイルクロラ イド 176mgを滴下した。室温にて2時間撹拌した後水 ml. t-butyl hydrazine hydrochloride 1.45g in addition to mixed solution of methylene chloride 10 ml and 10 % sodium hydroxide water solution 6.5 ml, themethylene chloride solution of 7 - methyl benzofuran - 6 - carbonyl chloride ahead under ice cooling was dripped. 2 hours after agitating, you poured to underwater and extracted withthe methylene chloride. You washed organic layer with saturated saline, after drying with anhydrous magnesium sulfate, youremoved solvent under vacuum, you acquired N - 7 - methyl benzofuran - 6 - carbo -N'-t-butyl hydrazine 380 mg (66 %) which is made object. It melted N - 7 - methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl hydrazine 380 mg in methylene chloride next, melting under ice cooling 3,5-di methyl benzoyl chloride 285 mg inthe methylene chloride including 4-di methylamino pyridine of pyridine 0.25 ml and catalyst amount, it dripped. 2 hours after agitating, you poured to underwater with room temperature, extracted with methylene chloride. You washed organic layer with 5 % hydrochloric acid, and saturated saline dried with the anhydrous magnesium sulfate. After removing solvent under vacuum, crystal which isacquired you washed with mixed solution of hexane and ethyl acetate, youacquired N - 7 methyl benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine 380 mg (yield 65 %) which is made object.

[0050] 1H-nmr (CDCl3) (ppm):1.63(9H,s), 2.27(9H,s), 6.5 7(1H,d,J=7.9 Hz), 6.71(1H,d,J=2.0 Hz), 6.99(1H,br s), 7.08(2H,br s), 7.28(1H,d,J=5.9 Hz) and 7.66(1H,d,J=2.0 Hz)

Production Example 5

2 hours heating and refluxing it did production: benzofuran - 6 carboxylic acid 220 mg and thionyl chloride 0.2 ml of N benzofuran - 6 - carbo -N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine in addition to methylene chloride 2 ml. It removed thionyl chloride and solvent of excess, melted in methylene chloride 1 ml. t-butyl hydrazine hydrochloride 850 mg in addition to mixed solution of methylene chloride 5 ml and 10 % sodium hydroxide water solution 4 ml, themethylene chloride solution of benzofuran - 6 - carbonyl chloride ahead under ice cooling was dripped. 2 hours after agitating, you poured to underwater and extracted with the methylene chloride. You washed organic layer with saturated saline, after drying with anhydrous magnesium sulfate, youremoved solvent under vacuum, you acquired N - benzofuran -6 - carbo - N' - t-butyl hydrazine 220 mg (70 %) which is made object. N - benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl hydrazine 220 mg was melted in methylene chloride 20 ml next, under ice cooling 3,5-di methyl benzoyl chloride 176 mg was drippedincluding 4-di methylamino pyridine of pyridine

JP 96231529A Machine Translation

中に注ぎ、塩化メチレンにて抽出を行った。有機層を5%塩酸水および飽和食塩水にて洗浄し、無水硫酸マグネシウムにて乾燥を行った。減圧下溶媒を留去した後、得られた結晶をヘキサンおよび酢酸エチルの混合溶液にて洗浄し、目的とするNーベンゾフランー6ーカルボーN'ーtertーブチルーN'ー3,5ージメチルベンゾイルヒドラジン 200mg(収率58%)を得た。

[0051] $^{1}H-NMR$ (CDCI3) δ (ppm) :| 1. 61 (9H, s) , 2. 23 (6H, s) , 6. 77 (1H, s) , 6. 91 (1H, s) , 7. 08 (2H, s) , 7. 22 (1H, d, J=8. 0Hz) , 7. 50 (1H, s) , 7. 53 (1H, d, J=8. 0Hz) , 7. 70 (1H, d, J=1. 7Hz) , 7. 75 (1H, br)

以下に本発明に係る化合物の代表例をその一般式と共に第1 表に示す。

[0052]

0.1 5 ml and catalyst amount. 2 hours after agitating, you poured to underwater with room temperature ,extracted with methylene chloride . You washed organic layer with 5 % hydrochloric acid, and saturated saline dried with the anhydrous magnesium sulfate . After removing solvent under vacuum, crystal which isacquired was washed with mixed solution of hexane and ethyl acetate, theN - benzofuran - 6 - carbo - N' - t-butyl - N' - 3,5-di methyl benzoyl hydrazine 200 mg (yield 58 %) which is made object was acquired.

[0051] 1H-nmr (CDCl3) (ppm):1.61(9H,s), 2.23(6H,s), 6.7 7(1H,s), 6.91(1H,s), 7.08(2H,s), 7.22(1H,d,J=8.0 Hz), 7.50(1H,s), 7.53(1H,d,J=8.0 Hz), 7.70(1H,d,J=1.7 Hz) and 7.75(1H,br)

Representative example of compound which relates to this invention below with General Formulais shown in Table 1.

[0052]

第1表

NO.	Α	R ¹	H2	R³	R ⁴	_R 5	R ⁶	R ⁷	m.p.(°C)
1	Н	Н	H	2-NO ₂	Н	Н	Н	-С(Мө) _З	
2	Н	H	1-1	2-F	H	Н	н	-С(Ме) _З	-
3	Н	Н	Н	3-Ме	Н	Н	Н	-Ć(Me) ₃	-
4	Н	Н	Н	3-Me	5-Me	Н	Н	-C(Me) ₃	177-179
5	Н	I	Н	2-CI	4-CI	Н	Н	-C(Me) ₃	99
6	H	H	Н	3-CI	4-CI	5-CI	Н	-C(Me) ₃	199
7	I	Н	H	3-Me	5-Me	Н	Н	-CH(Me)C(Me)3	•
8	Ι	7-Me	H	2-CF ₃	Н	Н	Н	-C(Me) ₃	-
9	Н	7-Me	I	3-Me	5-Me	Н	Н	-C(Me) ₃	185-187
10	Н	7-Me	Н	3-CI	5-CI	Н	Н	-C(Me) ₃	-
11	Ħ	7-Me	Н	3-OMe	5-Me	Н	Н	-CH(Me)C(Me)3	-
12	Н	7-Me	Н	3-OCH ₂ CF ₃	Σ	Н	CN	-CH(Me)C(Me)3	-
13	Ma	Н	Н	2-Br	H	H	Н	-C(Me)3	•
14	Me	Н	Н	2-CN	Н	Н	Н	-C(Me) ₃	-
15	Me	H	Н	3-Ме	5-Me	Н	Н	-C(Me) ₃	-
16	Me	Н	Н	3-Me	5-Me	Н	CN	-CH(Me)C(Me)3	.•
17	Me	7-Me	н	Н	Н	Н	Н	-C(Me) ₃	-
18	Me	7-Me	Н	3-Me	5-Me	Н	н	-C(Me)3	106-109
19	Me	7-Me	Н	2-F	5-Me	Н	Н	-C(Me) ₃	•
20	Ме	7-Me	Н	2-CH=CH ₂	Н	Н	Н	-C(Me) ₃	-

対照化合物A

【0053】次に本発明の殺虫組成物の製剤例を用いて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。実施例中、部とあるのは重量部を表す。

[0053] Next you explain concretely making use of Formulation Example of insecticidal composition of the this invention, but this invention is not something which is limited in these. In Working Example, part displays parts by weight.

【0054】製剤例1. 乳剤

[0054] Formulation Example 1. emulsion

ISTA's Paterra(tm), Version 1.5 (There may be errors in the above translation. ISTA cannot be held liable for any detriment from its use. WWW: http://www.intlscience.com Tel:800-430-5727)

化合物4の5部をジメチルスルホキシド、キシレンの混合液85部に溶解し、アルキルフェノール酸化エチレン縮合物とアルキルベンゼンスルホン酸カルシウムおよびポリオキシエチレン化ヒマシ油を混合して乳剤とした。本剤は水で希釈し散布剤として使用する。

【0055】製剤例2. 水和剤

化合物9の5部にホワイトカーボン15部、カオリン25部、クレー27.5部、珪藻土20部を混合し、さらにラウリル酸ナトリウムとリグニンスルホン酸ナトリウムの混合物7.5部を混合して微粉砕して水和剤を得た。本剤は水で希釈し散布液として使用する。

【0056】製剤例3. 粉剤

化合物4の0.5部にホワイトカーボン2部とタルク及び炭酸カルシウムの混合物を加え混合粉砕して粉剤とした。本剤はこのまま散布して使用する。

【0057】製造例4. 粒剤

化合物18の1部をベントナイト微粉末の33部、タルク64部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部と混合した後、水を加え均等になるまで混練する。次に射出成型機を通して造粒し、整粒機、乾燥機飾を通すことにより、粒径0.8mmの粒剤とした。本剤は直接水田面及び土壌面に散布して使用する。

【0058】製剤例5. 油剤

化合物1の0. 1部をジメチルスルホキシド5部に溶解し、ピペロニルブトキシド0. 5部と白灯油に混合して油剤を得た。本剤はこのまま使用する。

【0059】次に本発明の殺虫組成物が優れた作用性を示すことを具体的に試験例を挙げて説明する。

【 O O 6 O 】本発明の殺虫組成物の生物効果を試験例により 具体的に説明する。|

【0061】本発明化合物の20%水和剤あるいは5%乳剤を製剤例1および2に従って製造し、供試薬剤とした。

【0062】試験方法:キャベツ本葉10枚程度に生育したキャベツの中位葉を切り取り、各供試薬剤の有効成分が3pmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、径9cmのプラスチック容器に処理葉を2枚入れ、ハスモンヨ

It melted 5 part of compound 4 in mixed solution 8 5 part of di methyl sulfoxide and the xylene, mixed alkylphenol ethylene oxide condensate and calcium alkylbenzenesulfonate and polyoxyethylenated castor oil and made emulsion. It dilutes this agent with water and it uses as spreading agent.

[0055] Formulation Example 2. wettable

Mixing white carbon 1 5 part, kaolin 2 5 part, clay 27. 5 part and diatomaceous earth 2 0 part to 5 part of the compound 9, furthermore mixing blend 7. 5 part of sodium laurate and sodium lignin sulfonate and the fine pulverization doing it acquired wettable. It dilutes this agent with water and it uses as spread liquid.

[0056] Formulation Example 3. powder

Mixing and pulverization doing in 0. 5 part of compound 4 including blend of thewhite carbon 2 part and tale and calcium carbonate, it made powder. Spreading this way, you use this agent.

[0057] Production Example 4. granule

Until it becomes equal, 1 part of compound 18 3 3 part of bent onite fine powder, after mixing with talc 6 4 part and sodium lignin sulfonate 2 part, including water itkneads. Next granulating it did through injection molding machine, it made granule of the particle diameter 0.8 mm by passing through granulator and dryer sieve. Directly spreading to paddy field aspect and soil aspect, you usethis agent.

[0058] Formulation Example 5. oil

It melted 0.1 part of compound 1 in dimethyl sulfoxide 5 part, mixed to piperonyl butoxide 0.5 part and the white kerosene and acquired oil. You use this agent this way.

[0059] Listing Test Example concretely, you explain that activ ity where theinsecticidal composition of this invention is superior next is shown.

[0060] Organism effect of insecticidal composition of this invention is explained concretely withthe Test Example.

[0061] Following 20 % wettable or 5 % emulsion of the compound of this invention to Formulation Example 1 and 2, itproduced, made test chemical.

[0062] Test method: It cut off medium leaf of cabbage which is grown in cabbage true leaf 10-layer extent, inorder for active ingredient of each test chemical to become 3 ppm, 20 second itsoaked in processing solution which is diluted with water.

トウ3齢幼虫5頭を放虫した。容器には小穴を6ケ所あけた ふたをして、25℃の定温室内に静置した。処理、放虫してか ら5日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。結果は2 連の平均値で第2表に示した。 After air dry, treated leaf 2 was inserted in plastic container of thediameter 9 cm, Spodoptera litura (Fabricus) (tobacco cutworm) 3-instar larva 5 head releasing insect was done. Doing cover which small hole 6 place was opened in container, thestanding it did inside constant temperature chamber of 25 °C. After treatment, releasing insect doing, you investigated thenumber of living and dead insects after 5 day, calculated insect mortality. With mean value of 2 ream it showed result in Table 2.

[0063]

[Table 2]

[0063]

【表2】|

第2表 ハスモンヨトウに対する殺虫活性

供試化合物	死虫率 (%)		
4	6 0		
9	9 0		
18	100		
対照化合物A	20		

【0064】試験方法:3葉期のイネ13本を各供試薬剤の有効成分が1.5ppmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、イネをウレタンで巻きガラス円筒(内径44mm、高さ140mm)内に固定し、コブノメイガ3齢幼虫を5頭放虫したのち、ガラス円筒の上部を薬包紙でふたをした。ガラス円筒は25℃、16時間明期の恒温室内に静置した。処理、放虫してから5日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。なお、試験は3連制で行い、コブノメイガは感受性系統を供試した。結果を第3表に示した。

[0064] Test method: 20 second it soaked in processing solution which in order for active ingredient of eachtest chemical to become 1.5 ppm, dilutes rice 1 3 of 3-leaf stage with thewater. After air dry, it wound rice with urethane and locked insidethe glass cylindrical pipe (internal diameter 44 mm and height 140 mm), Cnaphalocrocis medinalis (Guenee) (rice leafroller) 3-instar larva 5 head releasing insect after doing, the upper part of glass cylindrical pipe it did cover with drug wrapping paper. standing it did glass cylindrical pipe inside constant temperature chamber of 25 °C and the 16 hours light period. After treatment, releasing insect doing, you investigated thenumber of living and dead insects after 5 day, calculated insect mortality. Furthermore, it tested, sensitivity system offering/accompanyingtried Cnaphalocrocis medinalis (Guenee) (rice leafroller) with 3 connected system. result was shown in Table 3.

[0065]

[Table 3]

[0065]

【表3】|

第3表 コブノメイガに対する殺虫活性

供試化合物	死虫率(%)		
4	100		
9	100		
18	100		
対照化合物A	6 0		

【0066】試験方法:長さ5cm前後の茶の葉10枚を供試薬剤の有効成分が12.5ppmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、径9cmのプラスチック容器に入れ、チャノコカクモンハマキ3齢幼虫を10頭放虫した。容器にふたをして、25℃、16時間明期の恒温室内に静置した。処理、放虫してから5日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。なお、試験は2連制で行い、チャノコカクモンハマキは感受性系統を供試した。結果を第4表に示した。

[0067]

【表4】

第4表 チャノコカクモンハマキに対する殺活性

供試化合物	死虫率(%)			
4	100			
9	100			
18				
対照化合物A	10			

[0066] Test method: 20 second it soaked in processing solution which in order for active ingredient of thetest chemical to become 12.5 ppm, dilutes leaf 10-layer of teaapproximately of length 5 cm with water. After air dry, you inserted in plastic container of diameter 9 cm, the10-insect release did Adoxophyes sp. 3-instar larva. Doing cover in container, standing it did inside constant temperature chamber of the25 °C and 1 6 hours light period. After treatment, releasing insect doing, you investigated thenumber of living and dead insects after 5 day, calculated insect mortality. Furthermore, it tested, sensitivity system offering/accompanyingtried Adoxophyes sp. with 2 connected system. result was shown in Table 4.

[0067]

[Table 4]